

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
7. September 2001 (07.09.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 01/64776 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **C08J 3/22**,  
C08L 23/04, 23/10

[DE/DE]; Adolf-von-Bayer-Strasse 26, 86368 Gersthofen  
(DE). **BOTT, Rainer** [DE/DE]; Bürgermeister-Aurnham-  
mer-Strasse 20, 86199 Augsburg (DE). **HESS, Reiner**  
[DE/DE]; Walter-Kollp-Strasse 7, 86368 Gersthofen (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/01669

(22) Internationales Anmeldedatum:  
15. Februar 2001 (15.02.2001)

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): CN, JP, US.

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): europäisches Patent (AT,  
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,  
NL, PT, SE, TR).

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
100 09 751.0 1. März 2000 (01.03.2000) DE  
100 63 421.4 20. Dezember 2000 (20.12.2000) DE

**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden  
Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen  
eintreffen

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): **CLARIANT GMBH** [DE/DE]; Brüningstrasse 50,  
65929 Frankfurt am Main (DE).

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen  
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on  
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe  
der PCT-Gazette verwiesen.

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **HOHNER, Gerd**

WO 01/64776 A1

(54) Title: IMPROVEMENT OF THE DISPERSION OF PIGMENTS IN POLYPROPYLENE

(54) Bezeichnung: VERBESSERUNG DER DISPERGIERUNG VON PIGMENTEN IN POLYPROPYLEN

(57) Abstract: The invention relates to the use of polyolefin waxes, which are produced by means of metallocene catalysis, for improving the dispersion of pigments in polypropylene.

(57) Zusammenfassung: Gegenstand der Erfindung ist die Verwendung von mittels Metallocenkatalyse hergestellten Polyolefinwachsen zur Verbesserung der Dispergierung von Pigmenten in Polypropylen.

## Verbesserung der Dispergierung von Pigmenten in Polypropylen

- 5 Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf ein Verfahren zur verbesserten Herstellung eines Färbemittels, bestehend aus mindestens einem Farbgeber, welcher sehr fein in einem schmelzbaren Basismaterial (Matrix) verteilt wird, das bei Raumtemperatur fest ist, sowie auf die Verwendung von Polyolefin-Wachsen, die mit Hilfe von Metallocen-Katalysatoren hergestellt wurden, zur Verbesserung  
10 der Dispergierung des Färbemittels in der Matrix Polypropylen, insbesondere zur Herstellung von Polypropylenfasern.

Pigment-Präparationen, die zur Färbung von Polyolefinen eingesetzt werden können, sind bekannt:

15

DE-B-1 239 093 beschreibt ein Trägermaterial zur Herstellung einer Pigmentpräparation, die aus einem Gemisch von einem amorphen Ethylen-Propylen-Block-Copolymer, das eine Viskosität von 5000 bis 300.000 cps bei 150°C aufweist, und einem niedermolekularen, kristallinen Polypropylen besteht.

20

In DE-A-26 52 628 wird der Einsatz eines niedermolekularen Polypropylenwachses mit einer Viskosität von 500 bis 5000 cP bei 170°C als Dispergierhilfsmittel beschrieben.

- 25 DE-C-42 36 337 beschreibt den Einsatz von Polyacrylat-Estern als Dispergierhilfsmittel für Pigmente in Kunststoff-Matrices.

- US-5 880 193 beschreibt die Verwendung eines amorphen Poly- $\alpha$ -olefins (0-90 %), welches im Gemisch mit einem Polyolefinwachs (0-90 %) und einem  
30 speziellen Polyacrylat (0-50%) eingesetzt wird.

Alle oben aufgeführten Substanzen bzw. Gemische zeigen den Nachteil, dass die Benetzung, insbesondere schwer dispergierbarer organischer Pigmente, wie die

der Chinacridon-Gruppe oder Phthalocyanine, nur unzureichend ist, und diese damit nur unzureichend fein in der Polypropylen-Matrix verteilt werden, was vor allem bei der folgenden Herstellung von Polypropylen-Fasern zu Strangbrüchen durch grobe Pigmentpartikel führt.

5

Es bestand somit die Aufgabe, ein Dispergierhilfsmittel für Pigmente in Polypropylen bereitzustellen, welches eine ausreichende Dispersion der Polymerpartikel bewirkt, so dass es zu weniger Strangbrüchen bei der Faserherstellung kommt.

10

Überraschenderweise wurde gefunden, dass durch Metallocenkatalyse hergestellte Polyolefinwachse eine sehr gute Dispergierung von Pigmenten in Polypropylen gewährleisten.

15

Gegenstand der Erfindung ist die Verwendung von mittels Metallocenkatalysatoren hergestellten Polyolefinwachsen als Dispergierhilfsmittel für Pigmente in Polypropylen.

20

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung eines Masterbatches durch Abmischung eines Polymers mit einem Färbemittel, gekennzeichnet durch die Zumischung mindestens eines durch Metallocenkatalyse erhaltenen Polyolefinwachses.

25

Bei den Pigmenten handelt es sich vorzugsweise um organische Pigmente.

30

Als Polyolefinwachse kommen Homopolymerisate des Ethylens oder des Propylens oder Copolymerisate aus beiden Olefinen oder Copolymerisate des Ethylens oder Propylens mit einem oder mehreren weiteren Olefinen in Frage. Als weitere Olefine werden lineare oder verzweigte Olefine mit 4-18 C-Atomen, vorzugsweise 4-6 C-Atomen, eingesetzt. Beispiele hierfür sind 1-Buten, 1-Hexen, 1-Octen oder 1-Octadecen, weiterhin Styrol. Die Copolymeren bestehen zu 70-99,9, bevorzugt zu 80-99 Gew.-% aus Ethylen oder Propylen. Bevorzugt sind Homopolymere des

Ethylens oder Propylens sowie Copolymere aus Ethylen und Propylen.

- Besonders gut geeignet sind Polyolefinwachse mit einem Tropfpunkt zwischen 90 und 165° C, bevorzugt zwischen 100 und 160°C, einer Schmelzviskosität bei
- 5 170°C zwischen 5 und 10000 mPa·s, bevorzugt zwischen 10 und 5000 mPa·s und einer Dichte bei 20°C zwischen 0,86 und 0,98 g/cm<sup>3</sup>, bevorzugt zwischen 0,87 und 0,96 g/cm<sup>3</sup>.

- Die Wachse können sowohl als solche als auch in polar modifizierter Form
- 10 eingesetzt werden. An sich bekannte Möglichkeiten zur Modifikation sind beispielsweise die Oxidation mit Luft oder die Pffropfpolymerisation mit polaren Monomeren, beispielsweise Maleinsäureanhydrid.

- In bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung werden die erfindungsgemäß
- 15 verwendeten Metallocen-Wachse in Abmischung mit Hilfs- und Zusatzstoffen verwendet, die die Dispergierwirkung der Metallocenwachse verbessern. Solche Hilfs- und Zusatzstoffe umfassen beispielsweise

- a) Polyethylenglykol
- 20 b) PE-Wachse,
- c) PTFE-Wachse,
- d) PP-Wachse,
- e) Amidwachse,
- f) FT-Paraffine,
- 25 g) Montanwachse,
- h) natürliche Wachse,
- i) makro- und mikrokristalline Paraffine,
- j) polare Polyolefinwachse, oder
- k) Sorbitanester
- 30 l) Polyamide,
- m) Polyolefine,
- n) PTFE,
- o) Netzmittel,

## p) Silikate.

Bei Zusatzstoff a) handelt es sich um Polyethylenglykol, Molekulargewichtsbereich vorzugsweise 10 bis 50000 Dalton, insbesondere 20 bis 35000 Dalton. Das

- 5 Polyethylenglykol kann in Mengen von bevorzugt bis zu 5 Gew.-% der metallocenwachshaltigen Zusammensetzung zugemischt werden.

Bei Zusatzstoff b) handelt es sich in bevorzugten Ausführungsformen um Polyethylen-Homo- und Copolymerwachse, die nicht mittels Metallocenkatalyse  
10 hergestellt wurden, und die ein zahlenmittleres Molekulargewicht von 700 bis 10.000 g/mol bei einem Tropfpunkt zwischen 80 und 140 °C aufweisen.

- Bei Zusatzstoff c) handelt es sich in bevorzugten Ausführungsformen um Polytetrafluoroethylen mit einem Molekulargewicht zwischen 30.000 und  
15 2.000.000 g/mol, insbesondere zwischen 100.000 und 1.000.000 g/mol.

- Bei Zusatzstoff d) handelt es sich in bevorzugten Ausführungsformen um Polypropylen-Homo- und Copolymerwachse, die nicht mittels Metallocenkatalyse  
hergestellt wurden, und die ein zahlenmittleres Molekulargewicht von 700 bis  
20 10.000 g/mol bei einem Tropfpunkt zwischen 80 und 160 °C aufweisen.

- Bei Zusatzstoff e) handelt es sich in bevorzugten Ausführungsformen um Amidwache, herstellbar durch Umsetzung von Ammoniak oder Ethylendiamin mit gesättigten und/oder ungesättigten Fettsäuren. Bei den Fettsäuren handelt es sich  
25 zum Beispiel um Stearinsäure, Talgfettsäure, Palmitinsäure oder Erucasäure.

Bei Zusatzstoff f) handelt es sich in bevorzugten Ausführungsformen um FT-  
Paraffine mit einem zahlenmittleren Molekulargewicht von 400 bis 800 g/mol bei  
einem Tropfpunkt von 80 bis 125 °C.

30

Bei Zusatzstoff g) handelt es sich vorzugsweise um Montanwache einschließlich Säure- und Esterwachsen mit einer Kohlenstoffkettenlänge der Carbonsäure von C<sub>22</sub> bis C<sub>36</sub>.

5

Bei den Esterwachsen handelt es sich vorzugsweise um Umsetzungsprodukte der Montansäuren mit ein oder mehrwertigen Alkoholen mit 2 bis 6 C-Atomen, wie zum Beispiel Ethandiol, Butan-1,3-diol oder Propan-1,2,3-triol.

- 5 Bei Zusatzstoff h) handelt es sich in einer bevorzugten Ausführungsform um Carnaubawachs oder Candelillawachs.

- Bei Zusatzstoff i) handelt es sich um Paraffine und mikrokristalline Wachse, welche bei der Erdölraffination anfallen. Die Tropfpunkte solcher Paraffine liegen  
10 vorzugsweise zwischen 45 und 65°C, die solcher mikrokristallinen Wachse vorzugsweise zwischen 73 und 100°C.

- Bei Zusatzstoff j) handelt es sich in bevorzugten Ausführungsformen um polare Polyolefinwachse, herstellbar durch Oxidation von Ethylen- oder Propylen-  
15 Homopolymer- und -Copolymerwachsen oder deren Pfropfung mit Maleinsäureanhydrid. Besonders bevorzugt wird hierfür von Polyolefinwachse mit einem Tropfpunkt zwischen 90 und 165°C, insbesondere zwischen 100 und 160°C, einer Schmelzviskosität bei 140°C (Polyethylenwachse) bzw. bei 170°C (Polypropylenwachse) zwischen 10 und 10000 mPas, insbesondere zwischen 50  
20 und 5000 mPas und einer Dichte bei 20°C zwischen 0,85 und 0,96 g/cm<sup>3</sup> ausgegangen.

- Bei Zusatzstoff k) handelt es sich in bevorzugten Ausführungsformen um Umsetzungsprodukte von Sorbit (Sorbitol) mit gesättigten und/oder ungesättigten  
25 Fettsäuren und/oder Montansäuren. Bei den Fettsäuren handelt es sich zum Beispiel um Stearinsäure, Talgfettsäure, Palmitinsäure oder Erucasäure.

- Bei Zusatzstoff l) handelt es sich um vorzugsweise gemahlene Polyamide, beispielsweise Polyamid-6, Polyamid-6,6 oder Polyamid-12. Die Partikelgrösse  
30 der Polyamide liegt vorzugsweise im Bereich von 5-200 µm, insbesondere 10-100 µm.

Bei Zusatzstoff m) handelt es sich um Polyolefine, also beispielsweise Polypropylen, Polyethylen oder Copolymere aus Propylen und Ethylen hoher oder niedriger Dichte mit Molgewichten von vorzugsweise 10.000 bis 1.000.000 D, insbesondere 15.000 bis 500.000 D als Zahlenmittel für das Molekulargewicht, deren Partikelgrösse durch Mahlung im Bereich von vorzugsweise 5-200 µm, insbesondere 10-100 µm liegt.

Bei Zusatzstoff n) handelt es sich um thermoplastisches PTFE mit einem Molgewicht von vorzugsweise 500.000 – 10.000.000 D, insbesondere 500.000 – 2.000.000 D als Zahlenmittel, dessen Partikelgrösse durch Mahlung im Bereich von vorzugsweise 5-200 µm, insbesondere 10-100 µm liegt.

Bei Zusatzstoff o) handelt es sich um amphiphile Verbindungen, welche im Allgemeinen die Oberflächenspannung von Flüssigkeiten senken. Bei den Netzmitteln handelt es sich zum Beispiel um Alkylethoxylate, Fettalkoholethoxolate, Alkylbenzolsulfonate oder Betaine.

Bei Zusatzstoff p) handelt es sich um Silikate, welche nicht als Füllstoff oder Pigment in den Rezepturen eingesetzt werden. Bevorzugt werden Kieselsäuren oder Talkum eingesetzt.

Das Mischungsverhältnis von Bestandteil a) zu den Bestandteilen b) bis p) kann im Bereich von 1 bis 99 Gew.-% a) zu 1 bis 99 Gew.-% b) bis p) variiert werden. Wird eine Mischung aus mehreren der Bestandteile b) bis p) verwendet, so gilt die Mengenangabe für die Summe aus den Mengen dieser Bestandteile.

In einer bevorzugten Ausführungsform werden die Wachse in mikronisierter Form für den erfindungsgemäßen Zweck verwendet. Insbesondere bevorzugt ist die Verwendung von Polyolefinwachs und gegebenenfalls zugemischten Hilfs- und Zusatzstoffen als Ultra-Feinstpulver mit einer Partikelgrößenverteilung  $d_{90} < 40 \mu\text{m}$ .

Besonders bevorzugt ist die erfindungsgemäße Verwendung von

Polyolefinwachsen zur Herstellung von Farbkonzentraten für Polyethylen-(LD)-Folien.

- 5 Metalloccenkatalysatoren zur Herstellung der Polyolefinwachse sind chirale oder nichtchirale Übergangsmetallverbindungen der Formel  $M^1L_x$ . Die Übergangsmetallverbindung  $M^1L_x$  enthält mindestens ein Metallzentralatom  $M^1$ , an das mindestens ein  $\Pi$ -Ligand, z.B. ein Cyclopentadienylligand gebunden ist. Darüber hinaus können Substituenten, wie z.B. Halogen-, Alkyl-, Alkoxy- oder Arylgruppen an das Metallzentralatom  $M^1$  gebunden sein.  $M^1$  ist bevorzugt ein
- 10 Element der III., IV., V. oder VI. Hauptgruppe des Periodensystems der Elemente, wie Ti, Zr oder Hf. Unter Cyclopentadienylligand sind unsubstituierte Cyclopentadienylreste und substituierte Cyclopentadienylreste wie Methylcyclopentadienyl-, Indenyl-, 2-Methylindenyl-, 2-Methyl-4-phenylindenyl-, Tetrahydroindenyl- oder Octahydrofluorenylreste zu verstehen. Die  $\Pi$ -Liganden
- 15 können verbrückt oder unverbrückt sein, wobei einfache und mehrfache Verbrückungen - auch über Ringsysteme - möglich sind. Die Bezeichnung Metalloccen umfasst auch Verbindungen mit mehr als einem Metalloccenfragment, sogenannte mehrkernige Metalloccene. Diese können beliebige Substitutionsmuster und Verbrückungsvarianten aufweisen. Die einzelnen
- 20 Metalloccenfragmente solcher mehrkernigen Metalloccene können sowohl gleichartig als auch voneinander verschieden sein. Beispiele für solche mehrkernigen Metalloccene sind z.B. beschrieben in EP-A-632 063.

- Beispiele für allgemeine Strukturformeln von Metalloccenen sowie für deren
- 25 Aktivierung mit einem Cokatalysator sind u.a. in EP-A-571 882 gegeben.

Die Erfindung wird durch die folgenden Beispiele erläutert.

#### Beispiele

30

Die Schmelzviskositäten der nachfolgend verwendeten Wachse wurden mit einem Rotationsviskosimeter entsprechend DGF-M-III 8 (57), die Tropfpunkte entsprechend DGF-M-III 3 (75) (Normen der Deutschen Gesellschaft für



Fettwissenschaft), die Dichten entsprechend DIN 53479 ermittelt.

Zur Definition der Qualität der Dispergierung eines Pigments in der Polyolefinmatrix wird in der Folge der Filterwert verwandt, der wie folgt definiert ist:

5

$$D_F = (p_{\max} - p_0) / m_{\text{pigment}}$$

Der Filterwert nach dieser Definition gibt also das Ausmaß des Druckanstieges durch Filtration einer bestimmten dispergierten Pigmentmenge wieder, mithin also das Maß der "Blockierung" des Filters durch undispergiertes oder schlecht dispergiertes Pigment, bezogen auf die eingesetzte Pigmentmenge.

Bei der Herstellung der beispielegemäßen Pigmentmasterbatches wird ein Henschel-Mischer FM 10 eingesetzt, der typischerweise 4 bis 10 Minuten (bei Raumtemperatur) mit 600 bis 1500 Umdrehungen/min für eine statistische Verteilung der Einsatzkomponenten sorgt. Die eigentliche Dispergierung (typischerweise einer in einer iPP-Matrix) findet in einem gleichläufigen Zweischneckenextruder mit einer Verfahrensteillänge von 30 bis 48 D statt, der mit einem Temperaturprofil von 30 bis 230°C (Einzug -> Düse) arbeitet. Die Umdrehungszahl liegt zwischen 100 bis 550 Umdrehungen/Minute, es wird mit einem Durchsatz von 4 bis 30 kg/h gearbeitet. In der folgenden Tabelle werden die Beispiele nach erfindungsgemäßem Vorgehen, bzw. entsprechende Vergleichsbeispiele nach dem Stand der Technik, dargestellt:

Bestandteil	1	2	3 (Vergleich)	4 (Vergleich)	5 (Vergleich)
Polyolefin-Wachs	30 % HBM 180	30 % HBM 408/409	Licowax® PP 230	Epolene® E 43	Lionwachs® 530
Typ	Metallocen	Metallocen	Ziegler-PP	PP- MSA	PP-Abbau
Pigment	40 % Blue 15:1	40 % Blue 15:1	40 % Blue 15:1	40 % Blue 15:1	40 % Blue 15:1
Polyolefin	30 % Borealis PP HG 235 J	30 % Borealis PP HG 235 J	30 % Borealis PP HG 235 J	30 % Borealis PP HG 235 J	30 % Borealis PP HG 235 J
Filterwert	14,8	12,0	17,0	19,8	17,6

## Patentansprüche

1. Verwendung von mittels Metallocenkatalysatoren hergestellten Polyolefinwachsen als Dispergierhilfsmittel für Pigmente in Polypropylen.
- 5 2. Verwendung gemäß Anspruch 1, worin das Polyolefinwachs aus Olefinen mit 3 bis 6 C-Atomen oder aus Styrol abgeleitet ist.
3. Verwendung gemäß Anspruch 1 und/oder 2, worin das Polyolefinwachs  
10 einen Tropfpunkt von 90 bis 130°C, eine Schmelzviskosität bei 140°C von 10 bis 10000 mPa·s und eine Dichte von 0,89 bis 0,98 g/cm<sup>3</sup> aufweist.
4. Verwendung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, worin die Polyolefinwachse polar modifiziert sind.
- 15 5. Verwendung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, worin die Polyolefinwachse in Abmischung mit einem oder mehreren Hilfs- und Zusatzstoffen, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus
  - a) Polyethylenglykol
  - 20 b) PE-Wachse,
  - c) PTFE-Wachse,
  - d) PP-Wachse,
  - e) Amidwachse,
  - f) FT-Paraffine,
  - 25 g) Montanwachse,
  - h) natürliche Wachse,
  - i) makro- und mikrokristalline Paraffine,
  - j) polare Polyolefinwachse, oder
  - k) Sorbitanester
  - 30 l) Polyamide, feinst gemahlen
  - m) Polyolefine, feinst gemahlen
  - n) PTFE, feinst gemahlen

im Gewichtsverhältnis Polyolefinwachs:Hilfs- und Zusatzstoff 1:99 bis 99:1 vorliegen.

6. Verwendung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, worin
- 5 Polyolefinwachs und gegebenenfalls die zugemischten Hilfs- und Zusatzstoffe als Ultra-Feinstpulver mit einer Partikelgrößenverteilung  $d_{90} < 40 \mu\text{m}$  vorliegen.

7. Verwendung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, wobei es sich beim Polypropylen um Polypropylenfasern handelt.

10

8. Verfahren zur Herstellung eines Masterbatches durch Abmischung eines Polymers mit einem Färbemittel, gekennzeichnet durch die Zumischung mindestens eines durch Metallocenkatalyse erhaltenen Polyolefinwachses.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 01/01669

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08J3/22 C08L23/04 C08L23/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08J C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 719 802 A (HOECHST AG) 3 July 1996 (1996-07-03) claim 2 page 7, line 27 - line 28 ---	1-8
Y	EP 0 843 222 A (HOECHST RES & TECH GMBH & CO) 20 May 1998 (1998-05-20) claim 1 page 2, line 56 -page 3, line 1 page 3, line 51 page 3, line 55 - line 56 ---	1-8
A	EP 0 890 619 A (CLARIANT GMBH) 13 January 1999 (1999-01-13) claim 1 examples 5-16 -----	1-8

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

\*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

\*X\* document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

\*Y\* document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

\* & \* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 June 2001

Date of mailing of the international search report

25/06/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Ehrenreich, W

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Int. .onal Application No

PCT/EP 01/01669

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0719802	A	03-07-1996	DE 4446923 A	04-07-1996
			AU 4061195 A	04-07-1996
			BR 9506122 A	23-12-1997
			CZ 9503473 A	17-07-1996
			DE 59508314 D	15-06-2000
			ES 2146704 T	16-08-2000
			JP 8231640 A	10-09-1996
			SG 76445 A	21-11-2000
			SK 163695 A	05-02-1997
			ZA 9510962 A	08-07-1996
EP 0843222	A	20-05-1998	JP 9043891 A	14-02-1997
			US 6052940 A	25-04-2000
			CA 2228457 A	13-02-1997
			CN 1200183 A	25-11-1998
			WO 9705528 A	13-02-1997
			US 6162572 A	19-12-2000
EP 0890619	A	13-01-1999	DE 19810891 A	14-01-1999
			JP 11071545 A	16-03-1999
			US 6080902 A	27-06-2000

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/01669

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C08J3/22 C08L23/04 C08L23/10

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08J C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP 0 719 802 A (HOECHST AG) 3. Juli 1996 (1996-07-03) Anspruch 2 Seite 7, Zeile 27 - Zeile 28 ---	1-8
Y	EP 0 843 222 A (HOECHST RES & TECH GMBH & CO) 20. Mai 1998 (1998-05-20) Anspruch 1 Seite 2, Zeile 56 - Seite 3, Zeile 1 Seite 3, Zeile 51 Seite 3, Zeile 55 - Zeile 56 ---	1-8
A	EP 0 890 619 A (CLARIANT GMBH) 13. Januar 1999 (1999-01-13) Anspruch 1 Beispiele 5-16 -----	1-8

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\* A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\* E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\* L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\* O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\* P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\* T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\* X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\* Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

\* Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

18. Juni 2001

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

25/06/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Ehrenreich, W

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/01669

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0719802 A	03-07-1996	DE 4446923 A	04-07-1996
		AU 4061195 A	04-07-1996
		BR 9506122 A	23-12-1997
		CZ 9503473 A	17-07-1996
		DE 59508314 D	15-06-2000
		ES 2146704 T	16-08-2000
		JP 8231640 A	10-09-1996
		SG 76445 A	21-11-2000
		SK 163695 A	05-02-1997
		ZA 9510962 A	08-07-1996
EP 0843222 A	20-05-1998	JP 9043891 A	14-02-1997
		US 6052940 A	25-04-2000
		CA 2228457 A	13-02-1997
		CN 1200183 A	25-11-1998
		WO 9705528 A	13-02-1997
		US 6162572 A	19-12-2000
EP 0890619 A	13-01-1999	DE 19810891 A	14-01-1999
		JP 11071545 A	16-03-1999
		US 6080902 A	27-06-2000